

(19) 【発行国】 日本国特許庁 (JP)

(12) 【公報種別】 公開特許公報 (A)

(11) 【公開番号】 特開平 9-169737

(43) 【公開日】 平成 9 年 (1997) 6 月 30 日

(54) 【発明の名称】 N-メチルイミダゾール類の製造法

(51) 【国際特許分類第 6 版】

C07D233/58

【F I】

C07D233/58

233/68

【審査請求】 未請求

【出願形態】 OL

【全頁数】 4

(22) 【出願日】 平成 7 年 (1995) 12 月 21 日

【識別番号】 000003300

【氏名又は名称】 東ソー株式会社

(72) 【発明者】

【氏名】 木曾 浩之

(19) [Publication Office] Japanese Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document] Japan Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application] Japan Unexamined Patent Publication Hei 9-169737

(43) [Publication Date of Unexamined Application] 1997 (1997) June 30 days

(54) [Title of Invention] PRODUCTION METHOD OF N-METHYL IMIDAZOLES

(51) [International Patent Classification 6th Edition]

C07D233/58

233/68

[FI]

C07D233/58

233/68

[Request for Examination] Examination not requested

[Number of Claims] 5

[Form of Application] OL

[Number of Pages in Document] 4

(21) [Application Number] Japan Patent Application Hei 7-333139

(22) [Application Date] 1995 (1995) December 21 day

(71) [Applicant]

[Applicant Code] 000003300

[Name] TOSOH CORPORATION (DB 69-057-1724)

[Address] Yamaguchi Prefecture Shinnanyo City Kaisei-cho 4560

(72) [Inventor]

[Name] Kiso Hiroyuki

[Address] Yamaguchi Prefecture Shinnanyo City Kamisako-cho

(72) 【発明者】

【氏名】長井 康行

【住所又は居所】山口県下松市桃山町 1 3 3

(72) 【発明者】

【氏名】原 康

【住所又は居所】山口県新南陽市政所 4 丁目 6 番 6 ー

(57) 【要約】

【課題】 炭酸ジメチルをメチル化剤として用いる従来の方法では、収率よく反応させるためには、触媒として炭酸カリウム及び高価なクラウンエーテルが不可欠であり、工業的な製造法としては適当ではなかった。

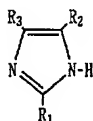
【解決方法】 イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させて N-メチルイミダゾール類を製造する際に、120 ~ 200 °C の温度範囲で反応を行う。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させて N-メチルイミダゾール類を製造する際に、120 ~ 200 °C の温度範囲で反応を行うことを特徴とする N-メチルイミダゾール類の製造法。

【請求項 2】 イミダゾール類が下記一般式 (1) で表されることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【化 1】



(R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub>は、互いに独立して水素原子、ハロゲン原子、又は脂肪族、芳香脂肪族、若しくは芳香族の基を意味する)

【請求項 3】 常圧下、炭酸ジメチルを滴下しながら反応を実施することを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の方法。

15 - 1

(72) [Inventor]

[Name] Nagai Yasuyuki

[Address] Yamaguchi Prefecture Kudamatsu City Momoyama-cho 133

(72) [Inventor]

[Name] Field healthy

(57) [Abstract]

[Problem] With conventional method which uses dimethyl carbonate as methylation agent, in order yield to react well, potassium carbonate and expensive crown ether being essential as catalyst, it was not suitable as industrial production method.

[Solution method] Imidazoles and dimethyl carbonate reacting, when producing N-methyl imidazoles, it reacts with temperature range of 120 to 200 °C.

[Claim(s)]

[Claim 1] Imidazoles and dimethyl carbonate reacting, when producing N-methyl imidazoles, production method of N-methyl imidazoles which reacts with temperature range of 120 to 200 °C and densely makes feature.

[Claim 2] Imidazoles being below-mentioned General Formula (1), method which is stated in Claim 1 which is displayed and densely makes feature.

[Chemical Formula 1]

(R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub>, becoming independent mutually, hydrogen atom, halogen atom, means the or aliphatic, araliphatic, or aromatic basis.)

[Claim 3] While under ambient pressure, dripping dimethyl carbonate, it executes reaction the method which is stated in Claim 1 or Claim 2 which densely is made feature.

【請求項4】 反応を液相で実施することを特徴とする請求項1乃至請求項3のいずれかに記載の方法。

【請求項5】 炭酸ジメチルの量をイミダゾール類化合物に対してモル比0.7～2倍で反応を実施することを特徴とする請求項1乃至請求項4のいずれかに記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、N-メチルイミダゾール類の製造法に関する。

【0002】 一般に、イミダゾール類は、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂等の樹脂硬化剤、又は硬化促進剤として、あるいは各種農薬、医薬、又は染料中間体として極めて有用な化合物である。

【0003】

【従来の技術】 N-メチルイミダゾール類の製造法として、イミダゾール類とメタノールを酸触媒存在下で反応させる方法が知られている。しかしながら、この方法では、少なくとも200℃以上の温度が必要で、また多量の酸を使用するため装置の腐食が問題となる。また、反応終了後、これらの酸を中和するため、アルカリ処理が必要となり操作上面倒である。

【0004】 一方、比較的低い温度で行う方法として、イミダゾール類をメチルハライド又はジメチル硫酸等でメチル化する方法が知られている。しかしながら、この方法は、取扱いが面倒なハライド化合物又は毒性の強いジメチル硫酸を原料として使用しなければならず、また生成したN-メチルイミダゾールがさらに反応して4級塩であるイミダゾリウム化合物を生成することから、必ずしも収率よくN-メチルイミダゾールを合成することができなかったり、あるいは生成物の分離が困難である場合が多い。

【0005】 これらの問題を解決するために、安全性の高い炭酸ジメチルをメチル化剤として用いる方法が開発された。Synthesis, 382頁(1986)によれば、イミダゾール類と炭酸ジメチルを炭酸カリウム及びクラウンエーテル存在下、100℃、8時間反応を行うことにより目的のN-メチルイミダゾール類を85～91%の収率で合成している。

【0006】

[Claim4] Reaction is executed with liquid phase method which is stated in theany of Claim 1 through Claim 3 which densely is made feature.

[Claim5] Quantity of dimethyl carbonate reaction is executed with mole ratio 0.7 to 2 timesvis-a-vis imidazoles compound method which is stated in any of theClaim 1 through Claim 4 which densely is made feature.

[Description of the Invention]

[0001]

[Technological Field of Invention] This invention regards production method of N - methyl imidazoles.

[0002] Generally, imidazoles is quite useful compound as epoxy resin, polyurethane resin or other resin curing agent, the curing promoter, or various pesticide, as pharmaceutical, or the dye intermediate.

[0003]

[Prior Art] As production method of N - methyl imidazoles, under acid catalyst existing method which reactshas been known imidazoles and methanol. But, with this method, temperature of 200 °C or higher being necessary at least, in addition in order to use acid of large amount, corrosion of the equipment becomes problem. In addition, in order after reaction termination, to neutralize these acid, the alkali treatment becomes necessary and it is an operation upper surface falling down.

[0004] On one hand, has been known imidazoles method which with such as methyl halide methylated is done or dimethyl sulfate as method which is done with the relatively low temperature. But, This method must use dimethyl sulfate where halide compound or toxicity where the handling is difficult is strong as starting material, N - methyl imidazole which in addition is formed furthermore reacting, from fact that imidazolium compound which is a quaternary salt is formed, yield N - methyl imidazole is always synthesized well densely not to be possible, or when separation of product is difficult is many.

[0005] In order to solve these problem, method which uses dimethyl carbonate where the safety is high as methylation agent was developed. N - methyl imidazoles of object is synthesized with yield of 85 to 91 % according to Synthesis (0039-7881, SYNIBF), 382 page (1986), I. M. Dahl and dimethyl carbonate under potassium carbonate and crown ether existence, by doing 100 °C and 8-hour reaction.

[0006]

【発明が解決しようとする課題】しかしながらこの方法では、収率よく反応させるために、触媒として炭酸カリウム及び高価なクラウンエーテルが不可欠であり、工業的な製造法として適当ではなかった。

【0007】本発明は上記の課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、触媒を用いることなく、高収率で目的のN-メチルイミダゾール類を得ることのできる製造法を提供することである。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、N-メチルイミダゾール類の製造法について鋭意検討をした結果、イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させてN-メチルイミダゾール類を製造する際に、120～200℃の温度範囲で反応を行うことにより、触媒を用いることなく、また4級のイミダゾリウム化合物を生成することも無く、極めて高収率で目的物を得られることを見出し、N-メチルイミダゾール類の新規な工業的製造法として、本発明を完成するに至った。

【0009】すなわち、本発明は、イミダゾール類と炭酸ジメチルを反応させてN-メチルイミダゾール類を製造する際に、120～200℃の温度範囲で反応を行うことを特徴とするN-メチルイミダゾール類の製造法である。

【0010】

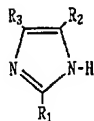
【発明の実施の形態】以下に本発明を詳細に説明する。

【0011】本発明の方法において、反応は120～200℃の温度範囲で行う。120℃未満では、反応が非常に遅くなるため実用的でなく、200℃を超える温度では、原料の分解が生じ、N-メチルイミダゾール類の収率が低下する。

【0012】本発明の方法において使用される原料は、下記一般式(1)で表されるイミダゾール類

【0013】

【化2】



[Problems to be Solved by the Invention] But with this method, in order yield well to react, potassium carbonate and the expensive crown ether being essential as catalyst, it was not suitable as the industrial production method.

[0007] As for this invention considering to above-mentioned problem, being something which it is possible, as for object, it is to offer the production method which can obtain N-methyl imidazoles of object with high yield without using catalyst.

[0008]

[Means to Solve the Problems] As for these inventors, Of doing diligent investigation concerning production method of N-methyl imidazoles as for result, imidazoles and dimethyl carbonate reacting, when producing N-methyl imidazoles, it is acquired object compound with quite high yield in addition forming imidazolium compound of quaternary without using catalyst by reacting with temperature range of the 120 to 200 °C, without, densely to discover, this invention it reached to completion as novel industrial production method of N-methyl imidazoles.

[0009] It is a production method of N-methyl imidazoles where namely, this invention, imidazoles and dimethyl carbonate reacting, when producing N-methyl imidazoles, reacts with temperature range of 120 to 200 °C and densely makes feature.

[0010]

[Embodiment of Invention] This invention is explained in detail below.

[0011] Regarding to method of this invention, it reacts with temperature range of the 120 to 200 °C. Under 120 °C, because reaction becomes very slow, not to be apractical, with temperature which exceeds 200 °C, disassembly of the starting material occurs, yield of N-methyl imidazoles decreases.

[0012] Regarding to method of this invention, starting material which is used is displayed with below-mentioned General Formula (1) imidazoles

[0013]

[Chemical Formula 2]

【0014】(R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub>は、互いに独立して水素原子、ハロゲン原子、又は脂肪族、芳香脂肪族、若しくは芳香族の基を意味する)と炭酸ジメチルである。

【0015】上記一般式(1)で表されるイミダゾール類としては、特に限定するものではないが、例えば、イミダゾール、2-メチルイミダゾール、4-メチルイミダゾール、2-エチルイミダゾール、4-エチルイミダゾール、2-プロピルイミダゾール、2-イソプロピルイミダゾール、2-ブチルイミダゾール、2-イソブチルイミダゾール、2-ペンチルイミダゾール、2-ヘキシルイミダゾール、2-オクチルイミダゾール、2-ドデシルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、2-アリルイミダゾール、2-ヒドロキシメチルイミダゾール、2-(β-ヒドロキシ)エチルイミダゾール、2-ベンジルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-シクロヘキシルイミダゾール、2-シアノエチルイミダゾール、4-ニトロイミダゾール、4-フォルミルイミダゾール、4-シアノイミダゾール、4-ヒドロキシメチルイミダゾール、4-アミノエチルイミダゾール、2, 4-ジメチルイミダゾール、4, 5-ジメチルイミダゾール、2, 4-ジエチルイミダゾール、4, 5-ジエチルイミダゾール、2, 4-ジフェニルイミダゾール、2, 4-ジシクロヘキシルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、2-イソプロピル-4-メチルイミダゾール、2-ブチル-4-メチルイミダゾール、2-メチル-4-フェニルイミダゾール、2-メチル-4-ニトロイミダゾール、2-メチル-4-フォルミルイミダゾール、2-フェニル-4-フォルミルイミダゾール、2-メチル-5-ニトロイミダゾール、2-メチル-5-フォルミルイミダゾール、4-メチル-5-フェニルイミダゾール、4-フェニル-5-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール、2-フェニル-4-エチルイミダゾール、4-メチル-5-ヒドロキシメチルイミダゾール、イミダゾール-4-カルボン酸、イミダゾール-4-ジチオカルボン酸、イミダゾール-4, 5-ジカルボン酸、2-フェニル-4-メチル-5-エチルイミダゾール、2-プロピル-4-ベンジル-5-フェニルイミダゾール等が挙げられる。

【0016】本発明の方法において、使用される炭酸ジメチルの量は、イミダゾール類化合物に対してモル比0.7~2倍の範囲で反応を行うことが好ましい。0.7未満であると未反応のイミダゾール類が多く残るため実用的でなく、2を越えると生成したN-メチルイミダゾールが、さらにイミダゾリウム化合物へ4級塩化される反応が進行しやすくなるためN-メチルイミダゾール類の収率が低下する場合がある。

[0014] (R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub>, becoming independent mutually, hydrogen atom, halogen atom, meansthe aliphatic, araliphatic, or aromatic basis. ) With it is a dimethyl carbonate.

[0015] It is not something which especially is limited as imidazoles which is displayed with above-mentioned General Formula (1). for example imidazole, 2-methyl imidazole, 4-methyl imidazole, 2-ethyl imidazole, 4-ethyl imidazole, 2-propyl imidazole, 2-isopropyl imidazole, 2-butyl imidazole, 2-isobutyl imidazole, 2-pentyl imidazole, 2-hexyl imidazole, 2-octyl imidazole, 2-dodecyl imidazole, 2-undecyl imidazole, 2-heptadecyl imidazole, 2-allyl imidazole, 2-hydroxymethyl imidazole, 2-( -hydroxy) ethyl imidazole, 2-benzyl imidazole, 2-phenyl imidazole, 2-cyclohexyl imidazole, 2-cyanoethyl imidazole, 4-nitro imidazole, 4-formyl imidazole, 4-cyano imidazole, 4-cyanoethyl imidazole, 4-hydroxymethyl imidazole, 4-aminoethyl imidazole, 2,4-di methyl imidazole, 4,5-di methyl imidazole, 2,4-di ethyl imidazole, 4,5-di diethyl imidazole, 2,4-di phenyl imidazole, 2,4-di benzyl imidazole, 2,4-di cyclohexyl imidazole, 2-ethyl - 4-methyl imidazole, 2-isopropyl - 4-methyl imidazole, 2-butyl - 4-methyl imidazole, 2-methyl - 4-phenyl imidazole, 2-methyl - 4-nitro imidazole, 2-methyl - 4-formyl imidazole, 2-phenyl - 4-formyl imidazole, 2-methyl - 5-nitro imidazole, 2-methyl-5-formyl imidazole, 2-phenyl - 5-formyl imidazole, 4-methyl - 5-phenyl imidazole, 4-phenyl - 5-methyl imidazole benzimidazole, the 2-(2-pyridyl) imidazole and 2-phenyl - 4-methyl imidazole, 2-phenyl - 4-ethyl imidazole, 4-methyl - 5-hydroxymethyl imidazole, imidazole - 4-carboxylic acid, imidazole - 4-di thio carboxylic acid, imidazole - 4,5-di carboxylic acid, you can list 2-phenyl - 4-methyl - 5-ethyl imidazole and 2-propyl - 4-benzyl - 5-phenyl imidazole etc.

[0016] Regarding to method of this invention, quantity of dimethyl carbonate which is used reacts in range of mole ratio 0.7 to 2 times vis-a-vis imidazoles compound, it is desirable densely. When it is under 0.7, because unreacted imidazoles remains mainly, not to be a practical, when it exceeds 2, because N-methyl imidazole which is formed, furthermore reaction which quaternization is done it becomes easy to advance to imidazolium compound there are times when yield of the N-methyl imidazoles decreases.

【0017】本発明の方法においては、副生成物及び着色防止を考慮して、不活性ガス、例えば、窒素ガス又はアルゴンガスで反応器を置換して行うことが好ましい。

【0018】本発明の方法は、液相で実施する。

【0019】本発明の方法において、反応は、常圧で行うことが好ましい。加圧下で反応を行った場合、4級化反応が進行し目的生成物を収率よく得ることは難しい。

【0020】本発明の方法は、炭酸ジメチルを滴下しながら反応させることが好ましい。本発明でいう滴下とは、例えば、ポンプを用いて試料を反応器に供給することあるいは、試料を上部から下部に落とすことをいう。滴下する速度は、反応温度によって決まり一概には決められないが、反応に消費される量に見合う速度で入れるのがよく、極端に過剰にならないようにすることが好ましい。極端に過剰になると、反応温度が炭酸ジメチルの沸点以上に保てなくなったり、炭酸ジメチルが系外に留出てくる。一方、炭酸ジメチルを一括に仕込んだ場合、反応温度を炭酸ジメチルの沸点より高く保つことができない。

【0021】本発明の方法において、溶媒は使用してもしなくてもさしつかえない。溶媒としては反応条件に不活性なものであれば特に制限はないが、原料であるイミダゾール類の沸点あるいは反応温度以上の沸点を有する溶媒を使用する方が好ましい。また、溶媒の用いる量については特に制限はない。

【0022】本発明の方法において、触媒を必要としないことが特徴であるが、触媒は使用してもさしつかえない。

【0023】

【実施例】以下、本発明の方法を実施例により説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0024】実施例1

200mlの三口フラスコに2-メチルイミダゾール41.1g(0.50モル)を入れ、窒素置換した後、160℃に加熱した。温度が上昇したところで、常圧、窒

[0017] Regarding to method of this invention, considering by-product and the coloring prevention, substituting reactor with inert gas, for example nitrogen gas or argon gas it does, it is desirable densely.

[0018] It executes method of this invention, with liquid phase.

[0019] Regarding to method of this invention, it reacts, under a ambient pressure, it is desirable densely. When it reacted under pressurizing, quaternization reaction advances and yield the target product it is difficult well to obtain.

[0020] As for method of this invention, while dripping dimethyl carbonate, it reacts densely it is desirable. Dripping as it is called in this invention, thing or sample which supply the sample to reactor making use of for example pump you drop into bottom from upper part, you say densely. rate which it drips is decided with reaction temperature and is not decided unconditionally. It is good, to insert with rate which it corresponds to the quantity which is consumed in reaction it tries not to become extremely excess, is desirable densely. When it becomes extremely excess, reaction temperature stops being able to maintain at boiling point or higher of dimethyl carbonate, dimethyl carbonate distills in outside the system. On one hand, when dimethyl carbonate was inserted in bundle, reaction temperature is maintained more highly than boiling point of dimethyl carbonate, it is not possible densely.

[0021] Regarding to method of this invention, as for solvent using, without doing, there is not an inconvenience. If they are inert ones in reaction condition as solvent, there is no especially restriction. Person who uses solvent which possesses boiling point of imidazole which is a starting material or boiling point above reaction temperature is desirable. In addition, concerning quantity which solvent uses there is no especially restriction.

[0022] Regarding to method of this invention, it does not need catalyst, it is a feature densely, but as for catalyst using, there is not an inconvenience.

[0023]

[Working Example(s)] Below, method of this invention is explained with Working Example, but the this invention is not something which is limited in these.

[0024] Working Example 1

You inserted 2-methyl imidazole 41.1g(0.50 mole) in three-neck flask of 200 ml, nitrogen substitution after doing, you heated to 160 °C. Being at point where temperature rose, under

窒素流下、炭酸ジメチル 49.6 g (0.55 モル) を 6 時間かけて滴下し、その後、さらに 2 時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率 94%、1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は 92% であった。

#### 【0025】実施例 2

200 ml のステンレス製オートクレーブに 2-メチルイミダゾール 41.1 g (0.50 モル) を入れ、窒素置換した後 160 °C に加熱した。温度が上昇したところで、常圧窒素流下、炭酸ジメチル 49.6 g (0.55 モル) を 3 時間かけて滴下し、さらに 2 時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率 98%、1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は 81% であった。

#### 実施例 3

200 ml のステンレス製オートクレーブに 2-メチルイミダゾール 41.1 g (0.50 モル) を入れ、窒素置換した後、160 °C に加熱した。温度が上昇したところで、炭酸ジメチル 49.6 g (0.55 モル) を 3 時間かけて滴下し、反応中、圧力が 2.5 MPa 以上になったら脱圧し、圧力を下げ、さらに 2 時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率 83%、1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は 80% であった。

#### 【0026】実施例 4

200 ml の三口フラスコに 2-メチルイミダゾール 41.1 g (0.50 モル) を入れ、窒素置換した後、120 °C に加熱した。温度が上昇したところで、常圧、窒素流下、炭酸ジメチル 49.6 g (0.55 モル) を 6 時間かけて滴下し、その後、さらに 2 時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析したところ、2-メチルイミダゾールの転化率 85%、1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は 91% であった。

#### 【0027】比較例

300 ml の三口フラスコに 2-メチルイミダゾール 41.1 g (0.50 モル) 及び炭酸ジメチル 49.6 g (0.55 モル) を入れ、窒素置換した後、90 °C に加熱し、8 時間攪拌しながら反応を継続した。反応終了後、室温まで冷却し、ガスクロマトグラフィーで分析した

ambient pressure, nitrogen stream, 6 hours applying dimethyl carbonate 49.6g(0.55 mole), while dripping. after that, furthermore the 2 hours agitating it continued reaction. When after reaction termination, it cooled to room temperature, analyzed with gas chromatography, the selectivity of conversion ratio 94%, 1,2-di methyl imidazole of 2-methyl imidazole was 92%.

#### [0025] Working Example 2

You inserted 2-methyl imidazole 41.1g(0.50 mole) in stainless steel autoclave of 200 ml, nitrogen substitution after doing, you heated to 160 °C. Being at point where temperature rose, under ambient pressure nitrogen stream, 3 hours applying dimethyl carbonate 49.6g(0.55 mole), while dripping, furthermore 2 hours agitating it continued reaction. When after reaction termination, it cooled to room temperature, analyzed with gas chromatography, the selectivity of conversion ratio 98%, 1,2-di methyl imidazole of 2-methyl imidazole was 81%.

#### Working Example 3

You inserted 2-methyl imidazole 41.1g(0.50 mole) in stainless steel autoclave of 200 ml, nitrogen substitution after doing, you heated to 160 °C. Being at point where temperature rose, 3 hours applying dimethyl carbonate 49.6g(0.55 mole), when it drips and while reacting, pressure becomes 2.5 MPa or greater, while the pressure release doing, lowering pressure, furthermore 2 hours agitating it continued reaction. When after reaction termination, it cooled to room temperature, analyzed with gas chromatography, the selectivity of conversion ratio 83%, 1,2-di methyl imidazole of 2-methyl imidazole was 80%.

#### [0026] Working Example 4

You inserted 2-methyl imidazole 41.1g(0.50 mole) in three-neck flask of 200 ml, nitrogen substitution after doing, you heated to 120 °C. Being at point where temperature rose, under ambient pressure, nitrogen stream, 6 hours applying dimethyl carbonate 49.6g(0.55 mole), while dripping. after that, furthermore the 2 hours agitating it continued reaction. When after reaction termination, it cooled to room temperature, analyzed with gas chromatography, the selectivity of conversion ratio 85%, 1,2-di methyl imidazole of 2-methyl imidazole was 91%.

#### [0027] Comparative Example

While inserting 2-methyl imidazole 41.1g(0.50 mole) and dimethyl carbonate 49.6g(0.55 mole) in three-neck flask of 300 ml, the nitrogen substitution after doing, heating to 90 °C, 8-hour agitating it continued reaction. When after reaction termination, it cooled to room temperature, analyzed with gas

ところ、2-メチルイミダゾールの転化率25%、1,2-ジメチルイミダゾールの選択率は94%であった。

[0028]

【発明の効果】 以上のように本発明によれば、触媒を用いることなく温和な条件で炭酸ジメチルをメチル化剤として使用することができ、また4級のイミダゾリウム化合物を生成することなく極めて高収率で目的のN-メチルイミダゾール類が得られるので、工業上極めて有用である。

chromatography, the selectivity of conversion ratio 25%, 1,2-di methyl imidazole of 2 - methyl imidazole was 94 %.

[0028]

[Effects of the Invention] Like above according to this invention, without using catalyst uses the dimethyl carbonate with moderate temperature condition densely to be possible, as methylation agent because the N - methyl imidazoles of object is acquired with quite high yield without in addition forming imidazolium compound of quaternary, on industry quite it is useful.